

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2001-244105

(43)Date of publication of application : 07.09.2001

---

(51)Int.Cl.

H01F 1/06

B22F 1/00

B22F 3/00

B22F 9/08

C21D 6/00

C22C 33/02

C22C 38/00

H01F 1/08

---

(21)Application number : 2000-  
051368

(71)Applicant : SEIKO EPSON CORP

(22)Date of filing : 28.02.2000 (72)Inventor : ARAI SEI

---

(54) MAGNET POWDER AND ISOTROPIC BONDED MAGNET

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide magnet powders and an isotropic bonded magnet which can provide a magnet superior in a molding property and magnetic characteristics.

SOLUTION: Magnet powders by being subjected to quenching by spraying, a fusion of an alloy composition represented by  $R_x(Fe_{1-y}Co_y)_{100-x-z-w}BzAlw$  (where R is at least one kind of rare-earth element, x is 7.1 to 9.9 atomic %; y is 0 to 0.30 atomic %; z is 4.6 to 6.9 atomic %; w is 0.02 to 1.5 atomic %) for obtaining magnet powders. Its constitution is a composite one, having a hard magnetic phase and a soft magnetic phase as main phases.

---

#### LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's  
decision of rejection]

[Kind of final disposal of application  
other than the examiner's decision of  
rejection or application converted  
registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's  
decision of rejection]

[Date of requesting appeal against  
examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

\* NOTICES \*

JPO and NCIP are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

## CLAIMS

---

[Claim(s)]

[Claim 1]  $R_x(Fe_{1-y}Co_y)_{100-x-z-w}BzAlw$  (however, R) At least one sort of rare earth elements,  $x:7.1$  to  $9.9$  atom %,  $y:0$  to  $0.30$ ,  $z:4.6$  to  $6.9$  atom %, Magnet powder which \*\*\*\*\* that it is the magnet powder obtained by carrying out spraying quenching of the molten metal of the alloy presentation expressed with  $w:0.02$  -  $1.5$  atom %, and he is the complex tissue where the configuration organization has the hard magnetism phase and software magnetism phase as a main phase.

[Claim 2] Said complex tissue is magnet powder according to claim 1 which is a nano composite organization.

[Claim 3] Magnet powder is magnet powder according to claim 1 or 2 manufactured by the atomizing method which used gas or a liquid.

[Claim 4] Magnet powder according to claim 1 to 3 whose diameter of average crystal grain is  $5-500nm$ .

[Claim 5] Magnet powder according to claim 1 to 4 whose mean particle diameter is  $1-150$  micrometers.

[Claim 6] Magnet powder is magnet powder according to claim 1 to 5 with which heat treatment is performed once [ at least ].

[Claim 7] The isotropic bond magnet characterized by coming to join magnet powder according to claim 1 to 6 together by joint resin.

[Claim 8] The isotropic bond magnet characterized for the constituent which

comes to mix magnet powder according to claim 1 to 6 and thermoplastics by injection molding or carrying out extrusion molding and being obtained.

[Claim 9] The isotropic bond magnet characterized by coming to join together the magnet powder which is the complex tissue where it is obtained by carrying out spraying quenching of the alloy molten metal containing aluminum, and the configuration organization has the hard magnetism phase and soft magnetism phase as a main phase by joint resin.

---

[Translation done.]

**\* NOTICES \***

JPO and NCIP are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

**DETAILED DESCRIPTION**

---

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention] This invention relates to magnet powder and an isotropic bond magnet.

[0002]

[Description of the Prior Art] Although a bond magnet carries out pressurization formation and is manufactured by the configuration of a request of the mixture (compound) of magnet powder and joint resin (organic binder), compression forming, the extrusion method, the injection-molding method, etc. are used for

the shaping approach.

[0003] Also in it, an injection-molding method and an extrusion method (especially injection-molding method) have the high degree of freedom of configuration selection, and have the advantage that productivity is high.

[0004] When manufacturing a bond magnet using these shaping approaches, it is necessary to fully raise the fluidity of the compound in a making machine. In order to raise the fluidity of a compound conventionally, the magnet powder manufactured by the atomizing method etc. was used.

[0005] However, the magnetic properties of the magnet powder obtained by the atomizing method were low as compared with the magnet powder obtained by other manufacture approaches, and were not what can be satisfied by the application etc.

[0006]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] The purpose of this invention is to offer the magnet powder and the isotropic bond magnet which can offer the magnet excellent in a moldability and magnetic properties.

[0007]

[Means for Solving the Problem] Such a purpose is attained by this invention of following the (1) - (9).

[0008] (1)  $R_x(Fe_{1-y}Co_y)_{100-x-z-w}BzAlw$  (however, R) At least one sort of rare earth elements,  $x:7.1$  to  $9.9$  atom %,  $y:0$  to  $0.30$ ,  $z:4.6$  to  $6.9$  atom %, Magnet powder which \*\*\*\*\* that it is the magnet powder obtained by carrying out spraying quenching of the molten metal of the alloy presentation expressed with  $w:0.02$  -  $1.5$  atom %, and he is the complex tissue where the configuration organization has the hard magnetism phase and software magnetism phase as a main phase.

[0009] (2) Said complex tissue is magnet powder given in the above (1) which is a nano composite organization.

[0010] (3) Magnet powder is magnet powder the above (1) manufactured by the atomizing method which used gas or a liquid, or given in (2).

[0011] (4) The above (1) whose diameter of average crystal grain is 5-500nm thru/or magnet powder given in either of (3).

[0012] (5) The above (1) whose mean particle diameter is 1-150 micrometers thru/or magnet powder given in either of (4).

[0013] (6) Magnet powder is the above (1) to which heat treatment is performed once [ at least ] thru/or magnet powder given in either of (5).

[0014] (7) The isotropic bond magnet characterized by coming to join the above (1) thru/or magnet powder given in either of (6) together by joint resin.

[0015] (8) The isotropic bond magnet characterized for the constituent which comes to mix the above (1) thru/or magnet powder given in either of (6), and thermoplastics by injection molding or carrying out extrusion molding and being obtained.

[0016] (9) The isotropic bond magnet characterized by coming to join together the magnet powder which is the complex tissue where it is obtained by carrying out spraying quenching of the alloy molten metal containing aluminum, and the configuration organization has the hard magnetism phase and software magnetism phase as a main phase by joint resin.

[0017]

[Embodiment of the Invention] Hereafter, the gestalt of operation of the magnet powder of this invention and an isotropic bond magnet is explained to a detail.

[0018] the magnet powder of [alloy presentation of magnet powder] this invention consists of an alloy presentation expressed with  $R_x(Fe_{1-y}Co_y)_{100-x-z-w}BzAlw$  (however, R -- at least one sort of rare earth elements, x:7.1 to 9.9 atom %, y:0 to 0.30, z:4.6 to 6.9 atom %, and w:0.02 to 1.5 atom %).

[0019] as R (rare earth elements), Y, La, Ce, Pr, Nd, Pm, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu, and a misch metal mention -- having -- these -- one sort -- or two or more sorts can be included.

[0020] The content (content) of R is made into 7.1 to 9.9 atom %. Even if coercive force sufficient by under 7.1 atom % is not acquired but R adds aluminum, there is little improvement in coercive force. On the other hand, if R

exceeds 9.9 atom %, since the potential of magnetization will fall, sufficient flux density is no longer obtained.

[0021] Here, as for R, it is desirable that they are the rare earth elements which are mainly concerned with Nd and/or Pr. The reason is effective [ these rare earth elements ] in order to raise the saturation magnetization of the hard magnetism phase which constitutes complex tissue (especially nano composite organization) and to realize coercive force good as a magnet.

[0022] Moreover, as for R, it is desirable that the percentage is 5 - 75% to the whole R including Pr, and it is more desirable that it is 20 - 60%. It is because coercive force and square shape nature can be raised, without producing most falls of a residual magnetic flux density as it is this range.

[0023] Moreover, as for R, it is desirable that the percentage is 14% or less to the whole R including Dy. While being able to raise coercive force, without producing the remarkable fall of a residual magnetic flux density as it is this range, it is because improvement in the temperature characteristic (thermal stability) is also attained.

[0024] Co is transition metals which have the same property as Fe. Although Curie temperature becomes high and the temperature characteristic improves by adding this Co (permuting a part of Fe), when the permutation ratio of Co to Fe exceeds 0.30, both coercive force and flux density show the inclination to fall. In 0.05-0.20, since not only the improvement in the temperature characteristic but the flux density itself improves, the permutation ratio of Co to Fe is still more desirable.

[0025] B (boron) is an element effective in acquiring high magnetic properties, and the content is made into 4.6 to 6.9 atom %. Square shape nature [ in / that B is under 4.6 atom % / a B-H (J-H) loop formation ] worsens. On the other hand, if B exceeds 6.9 atom %, a nonmagnetic phase will increase and flux density will decrease rapidly.

[0026] aluminum is an advantageous element for the improvement in coercive force, and the effectiveness of the improvement in coercive force shows up

notably in the range of 0.02 - 1.5 atom % especially. Moreover, in this range, it follows in footsteps of improvement in coercive force, and square shape nature and the maximum magnetic energy product also improve. Furthermore, it becomes good also about thermal resistance and corrosion resistance. However, as mentioned above, such effectiveness by aluminum addition has R very small at under 7.1 atom %. Moreover, if aluminum exceeds 1.5 atom %, the fall of magnetization will arise.

[0027] Although aluminum itself is not the new matter, in addition, in this invention In the magnet powder which consists of complex tissues which have a software magnetism phase and a hard magnetism phase as a result of repeating an experiment and research \*\* By making aluminum contain in the range of 0.02 - 1.5 atom % The outstanding square shape nature, \*\* which can aim at the improvement (reduction of an absolute value) of \*\* irreversible demagnetizing factor which can aim at improvement in coercive force, securing the maximum magnetic energy product -- three effectiveness that good corrosion resistance can be held is acquired -- It finds out that especially such effectiveness is acquired by coincidence, and the meaning of this invention is in this point.

[0028] Thus, in this invention, it is an opposite effect rather to add the amount which finds out the description for aluminum to carry out [ a minute amount or ] little content, and exceeds 1.5 atom %, and this invention is not just going to mean.

[0029] In addition, although the range where aluminum content is desirable is 0.02 to 1.5 atom % as mentioned above, as for the upper limit of this range, it is more desirable that it is 1.0 atoms %, and it is still more desirable that it is 0.8 atoms %.

[0030] Moreover, in the alloy which constitutes magnet powder from a purpose of raising magnetic properties further, at least one sort of elements chosen from the group (this group is expressed with "Q" below) which consists of Cu, Si, Ga, Ti, V, Ta, Zr, Nb, Mo, Hf, Ag, Zn, P, germanium, Cr, and W can also be contained if needed. When it contains the element belonging to Q, it is desirable that it is



below 2 atom %, as for the content, it is more desirable that it is 0.1 to 1.5 atom %, and it is still more desirable that it is 0.2 to 1.0 atom %.

[0031] Content of the element belonging to Q demonstrates the effectiveness of the proper according to the class. For example, Cu, Si, Ga, V, Ta, Zr, Cr, and Nb are effective in raising corrosion resistance.

[0032] [Complex tissue] Magnet powder consists of complex tissues which have the hard magnetism phase and software magnetism phase as a main phase again.

[0033] This complex tissue (nano composite organization) exists by the pattern (model) as the software magnetism phase 10 and the hard magnetism phase 11 show to drawing 1, drawing 2, or drawing 3, and the thickness and particle size of each phase exist on nano meter level. And the software magnetism phase 10 and the hard magnetism phase 11 adjoin each other (it contains, also when it adjoins through a grain boundary phase), and a magnetic exchange interaction is produced.

[0034] The main phase of this complex tissue is a hard magnetism phase. Thereby, magnetic properties excellent in coercive force and square shape nature are acquired.

[0035] As for the diameter of average crystal grain of each phase, it is desirable that it is 5-500nm, and it is more desirable that it is 10-200nm. The effect of the exchange interaction between crystal grain may become it strong that the diameter of average crystal grain of each phase is under a lower limit too much, flux reversal may become easy, and coercive force may deteriorate.

[0036] On the other hand, if the diameter of average crystal grain of each phase exceeds a upper limit, since the effect of big-and-rough-izing of the diameter of crystal grain and the exchange interaction between crystal grain becomes weak, flux density, coercive force, square shape nature, and a maximum energy product may deteriorate.

[0037] In addition, the pattern shown in drawing 1 - drawing 3 is an example, and is not restricted to these.

[0038] Since magnetization of a software magnetism phase changes the sense easily according to an operation of an external magnetic field, if it is intermingled in the hard magnetism phase which is the main phase, the magnetization curve of the whole system will turn into a "snake die-bending line" which has a stage with the second quadrant of a B-H Fig. However, when the size of a software magnetism phase is sufficiently small, magnetization of the software magnetic substance is restrained sufficiently strongly by association with magnetization of the surrounding hard magnetic substance, and the whole system comes to act as the hard magnetic substance.

[0039] The magnet with such complex tissue (nano composite organization) mainly has the next descriptions 1-5.

[0040] 1) With the second quadrant of a B-H Fig. (J-H Fig.), magnetization carries out springback reversibly (it is also called a "spring magnet" in this semantics).

2) Magnetization nature is good and can magnetize in a comparatively low magnetic field.

3) Compared with the case where the temperature dependence of magnetic properties is hard magnetism phase independent, it is small.

4) Aging of magnetic properties is small.

5) Even if it pulverizes, magnetic properties do not deteriorate.

[0041] In the alloy presentation mentioned above, a hard magnetism phase and a software magnetism phase serve as the following, for example.

[0042] Hard magnetism phase: An R2TM14B system (however, TM, Fe, or Fe and Co) or an R2 (TM, aluminum)14B system (or an R2 (TM, Q)14B system, an R2 (TM, aluminum, Q)14B system)

Software magnetism phase: TM (especially alpha-Fe, alpha- (Fe, Co)) or the alloy phase of TM and aluminum, the compound phase of TM and B, the compound phase (or phase containing such Q) of TM, and B and aluminum

[0043] The magnet powder of [manufacture approach of magnet powder] this invention is manufactured by carrying out spraying quenching of the molten metal

of the alloy presentation mentioned above using an atomizing process. For example, the gas atomizing method using inert gas, such as the liquid quenching atomizing method using liquids, such as water, liquid nitrogen, and liquid argon, as an atomizing process, and argon gas, gaseous helium, nitrogen gas, etc. is mentioned.

[0044] By using such an approach, magnet powder, such as the shape of an abbreviation globular form, can be easily manufactured by setup of manufacture conditions etc.

[0045] Moreover, since magnet powder is obtained directly, without passing through processes, such as grinding, a production process is simplified and low cost-ization is attained.

[0046] Hereafter, an example of the gas atomizing method is explained. By the gas atomizing method, the equipment (magnet powder manufacturing installation) which manufactures magnet powder consists of a barrel which can contain a magnet ingredient, and a gas injection nozzle which injects inert gas.

[0047] The nozzle (orifice) which injects the molten metal of a magnet ingredient (alloy) is formed in the lower limit of a barrel.

[0048] Moreover, by arranging the coil for heating at the periphery near the nozzle of a barrel, and impressing a RF to this coil, the inside of a barrel is heated and the magnet ingredient in a barrel is changed into a dissolution condition. The gas injection nozzle is prepared directly under [ where an alloy molten metal flows out ] the nozzle.

[0049] Such a magnet powder manufacturing installation is installed in a chamber, and operates in the condition of having filled up with inert gas or other controlled atmospheres preferably in this chamber. In order to prevent oxidation of magnet powder especially, as for a controlled atmosphere, it is desirable that it is inert gas, such as for example, argon gas, gaseous helium, and nitrogen gas.

[0050] In a magnet powder manufacturing installation, if magnet ingredients (alloy) are paid in a barrel, and it heats with a coil, it fuses and the regurgitation of the molten metal is carried out from a nozzle, inert gas, such as argon gas,

gaseous helium, and nitrogen gas, is injected, it will quench an alloy molten metal and magnet powder will be obtained from the gas injection nozzle prepared directly under the nozzle.

[0051] Although the temperature of the alloy molten metal made to flow out of a nozzle (orifice) changes a little with alloy presentations etc. at this time, it is desirable that it is 1200-1600 degrees C, and it is more desirable that it is 1300-1500 degrees C.

[0052] Moreover, although especially the pressure of the inert gas injected from a gas injection nozzle is not limited, it is desirable that it is 10 - 200 kgf/cm<sup>2</sup>, and it is more desirable that it is 15 - 100 kgf/cm<sup>2</sup>.

[0053] Moreover, as for the mean particle diameter of magnet powder, it is desirable that it is 1-150 micrometers, and it is more desirable that it is 5-80 micrometers. It becomes impossible for the rate of the volume of the part into which the magnet powder front face has oxidized that the mean particle diameter of magnet powder is under a lower limit to ignore compared with the whole powder product, and only magnetic properties low as a result may be acquired. Moreover, the problem on handling -- there is fear of ignition -- is also produced. On the other hand, if the mean diameter of magnet powder exceeds a upper limit, when magnet powder will be used for manufacture of a bond magnet, the fluidity of the constituent for magnets at the time of shaping of a bond magnet (compound) may not fully be acquired.

[0054] Moreover, in order to obtain the better moldability at the time of shaping of a bond magnet, the particle size distribution of the magnet powder obtained has that desirable which is distributed to some extent (there is variation). When the void content of the obtained bond magnet can be reduced by this, consequently the content of the magnet powder in a bond magnet is made the same, the consistency and mechanical strength of a bond magnet can be raised more, and magnetic properties can be improved further.

[0055] In addition, to the obtained magnet powder, heat treatment can also be performed once [ at least ] for the purpose of promotion of recrystallization of an

amorphous organization, homogenization of an organization, etc., for example. As conditions for this heat treatment, it is 400-900 degrees C, and is about 0.5 - 300 minutes, for example.

[0056] Moreover, in order to prevent oxidation, as for this heat treatment, it is desirable to carry out in a non-oxidizing atmosphere like [ under a vacuum or a reduced pressure condition (for example,  $1 \times 10^{-1}$  -  $1 \times 10^{-6}$  Torr) or in inert gas, such as nitrogen gas, argon gas, and gaseous helium, ].

[0057] When a bond magnet is manufactured using the above magnet powder, such magnet powder has good affinity (wettability of joint resin) with joint resin, therefore this bond magnet has a high mechanical strength, and it becomes the thing excellent in thermal stability (thermal resistance) and corrosion resistance. Therefore, the magnet powder concerned fits manufacture of a bond magnet.

[0058] [A bond magnet and its manufacture], next the isotropic bond magnet (only henceforth a "bond magnet") of this invention are explained.

[0059] The bond magnet of this invention comes to join the above-mentioned magnet powder together by joint resin preferably.

[0060] As joint resin (binder), any of thermoplastics and thermosetting resin are sufficient.

[0061] As thermoplastics, for example A polyamide (example: nylon 6, Nylon 46, Nylon 66, Nylon 610, Nylon 612, Nylon 11, Nylon 12, Nylon 612, nylon 6 -66), Liquid crystal polymers, such as thermoplastic polyimide and aromatic polyester, polyphenylene oxide, Polyolefines, such as polyphenylene sulfide, polyethylene, polypropylene, and an ethylene-vinylacetate copolymer, Denaturation polyolefine, a polycarbonate, polymethylmethacrylate, Polyester, such as polyethylene terephthalate and polybutylene terephthalate, The copolymer which is mainly concerned with these, a blend object, a polymer alloy, etc. are mentioned, and a polyether, a polyether ether ketone, polyether imide, polyacetal, etc. can mix and use 1 of sorts of these, and two sorts or more.

[0062] Also among these, especially the moldability is excellent, and since the mechanical strength is high, that which is mainly concerned with a liquid crystal

polymer and polyphenylene sulfide from the point of a polyamide and heat-resistant improvement is desirable. Moreover, these thermoplastics is excellent also in kneading nature with magnet powder.

[0063] Such thermoplastics has the advantage that selection wide range like what thought the moldability as important, and the thing which thought thermal resistance and a mechanical strength as important is attained by the class, copolymerization-ization, etc.

[0064] On the other hand, as thermosetting resin, various epoxy resins, such as a bisphenol mold, a novolak mold, and a naphthalene system, phenol resin, a urea resin, melamine resin, polyester (unsaturated polyester) resin, polyimide resin, silicone resin, polyurethane resin, etc. are mentioned, and 1 of sorts of these and two sorts or more can be mixed and used, for example.

[0065] From the point of especially the moldability being excellent also among these, and a mechanical strength being high and excelling in thermal resistance, an epoxy resin, phenol resin, polyimide resin, and silicone resin are desirable, and especially an epoxy resin is desirable. Moreover, these thermosetting resin is excellent also in kneading nature with magnet powder, and the homogeneity of kneading.

[0066] In addition, the thing of a solid [ thing / liquefied ] (powdered) is sufficient as the thermosetting resin (un-hardening) used at a room temperature.

[0067] Such a bond magnet of this invention is manufactured as follows, for example. Magnet powder, joint resin, and the need are accepted, and additives (an anti-oxidant, lubricant, etc.) are mixed, it kneads (for example, kneading between \*\*), the constituent for bond magnets (compound) is manufactured, and it fabricates in a desired magnet configuration all over a non-magnetic field using this constituent for bond magnets by the shaping approaches, such as injection molding, extrusion molding, and compression molding (press forming). When joint resin is thermosetting resin, it is hardened with heating etc. after shaping.

[0068] Injection molding has the advantage that the degree of freedom to a magnetic configuration can also manufacture the magnet of a large especially

complicated configuration easily. Moreover, like injection molding, the degree of freedom of extrusion molding to a magnetic configuration is large, and it has the advantage that productivity is also high.

[0069] The magnet powder of this invention has the high fluidity, and is suitable for manufacturing a bond magnet with extrusion molding or injection molding. Therefore, it is desirable that it is the bond magnet manufactured by extrusion molding or injection molding.

[0070] Especially the content (content) of the magnet powder in a bond magnet is not limited, but is usually determined in consideration of coexistence with the shaping approach, and a moldability and high magnetic properties. It is desirable that it is about 75-99.5wt%, and, specifically, it is more desirable that it is about 85-97.5wt%.

[0071] Although the bond magnet was especially manufactured by extrusion molding or injection molding, as for the content of magnet powder, to a case, it is desirable that it is about 75-98wt%, and it is more desirable to it that it is about 85-97wt%.

[0072] In this case, as for the joint resin used, it is desirable at the time of kneading that it is thermoplastics mentioned above in respect of the fluidity of the compound at the time of shaping.

[0073] Moreover, although the bond magnet was manufactured by compression molding, as for the content of magnet powder, to a case, it is desirable that it is about 90-99.5wt%, and it is more desirable to it that it is about 93-98.5wt%.

[0074] Since the flux density of magnet powder and coercive force are large, even when it fabricates to a bond magnet in this invention, and there are many contents of magnet powder and there are [ not to mention ] comparatively few contents, by it, outstanding magnetic properties (especially high maximum magnetic energy (product BH) max) are acquired. Therefore, even when a bond magnet is manufactured like injection molding or extrusion molding by the approach which cannot make the content (content) of magnet powder high compared with compression molding, outstanding magnetic properties are

acquired.

[0075] the configuration of the bond magnet of this invention, especially a dimension, etc. are limited -- not having -- for example, a configuration -- being related -- cylindrical and a prismatic form -- the thing of all configurations, such as cylindrical (the shape of a ring), circular, plate-like, and curve tabular, is possible, and the thing of all magnitude is possible also for the magnitude from a large-sized thing to a micro thing.

[0076]

[Example] Next, the concrete example of this invention is explained.

[0077] (Example 1) The magnet powder (seven sorts of magnet powder to which the aluminum content w was changed variously) by which an alloy presentation is expressed with an approach which is described below by

$8.6(\text{Nd}_{0.7}\text{Pr}_{0.25}\text{Dy}_{0.05})\text{Fe}_{14}\text{Co}_{7.0}\text{B}_{5.4}\text{Al}_w$  was obtained.

[0078] First, weighing capacity of each raw material of Nd, Pr, Dy, Fe, Co, B, and aluminum was carried out, and the hardener ingot was cast.

[0079] In the inert gas ambient atmosphere, said hardener was dissolved within the crucible with which the orifice with a diameter of 3mm was prepared in the pars basilaris ossis occipitalis, and the alloy molten metal was obtained. This alloy molten metal was made to flow out of an orifice in the place which made temperature of this alloy molten metal 1350 degrees C. At this time, argon gas was injected by the pressure of 50 kgf/cm<sup>2</sup> from the gas injection nozzle which is directly under an orifice, and magnet powder was obtained by quenching an alloy molten metal. Thus, the mean particle diameter of each obtained magnet powder is shown in Table 1.

[0080] Heat treatment for 700 degree-Cx 600 seconds was performed among the argon gas ambient atmosphere to each obtained magnet powder.

[0081] About the magnet powder with which this heat treatment was performed, in order to analyze that phase configuration, the X diffraction was performed at 20 degrees - 60 degrees of angle of diffractions using Cu-Kalpha. It was checked that an R2 (Fe-Co)<sub>14</sub>B type phase (hard magnetism phase) exists, and alpha-



(Fe, Co) type phase (software magnetism phase) exists with it as a main phase from a diffraction pattern. Furthermore, forming complex tissue (nano composite organization) was checked by each from the observation result by the transmission electron microscope (TEM). About each magnet powder, the diameter of average crystal grain of each phase is shown in Table 1.

[0082] as a small amount of hydrazine system anti-oxidant and lubricant to this magnet powder as [ polyamide resin (Nylon 12) ] -- mixing -- these -- 225degrees-Cx -- for 15 minutes, it kneaded and the constituent for bond magnets (compound) was produced. At this time, the rate of a compounding ratio (weight ratio) of magnet powder and polyamide resin (Nylon 12) was made into the value almost equal about each bond magnet. That is, the content (content) of the magnet powder in each bond magnet was about 93 wt(s)%.

[0083] Subsequently, this compound was ground, it presupposed that it is granular, injection molding of this granular object was carried out using the injection molding machine (Japan Steel Works Make, J50-E2), and the isotropic bond magnet of the shape of a cylinder with a diameter [ of 10mm ] x height of 7mm was obtained. The die temperature at the time of shaping was 225 degrees C whenever [ 90 degrees-C and injection cylinder internal temperature ].

[0084] About these bond magnets, after giving pulse magnetization with a magnetic field strength of 3.2MA [/m ], magnetic properties (flux density Br, coercive force HcJ, and maximum magnetic energy (product BH) max) were measured by maximum impression magnetic field 2.0 MA/m with the dc self-recording fluxmeter (the Toei Industry make, TRF-5BH). The temperature at the time of measurement was 23 degrees C (room temperature).

[0085] About each bond magnet, the aluminum content w, flux density Br, coercive force HcJ, and the value of maximum magnetic energy (product BH) max are shown in Table 1.

[0086]

[Table 1]

サンプルNo.	w	平均粒径 ( $\mu\text{m}$ )	平均結晶粒径 (nm)	B r (T)	H <sub>cJ</sub> (kA/m)	(BH) <sub>max</sub> (kJ/m <sup>3</sup> )
1 (比較例)	0	40	77	0.50	396	39.5
2 (本発明)	0.04	39	57	0.62	489	58.2
3 (本発明)	0.1	38	51	0.64	515	60.3
4 (本発明)	0.2	39	47	0.66	530	64.5
5 (本発明)	0.5	41	44	0.68	562	66.7
6 (本発明)	1.5	43	50	0.65	541	61.9
7 (比較例)	2.2	40	75	0.52	402	40.6

[0087] The bond magnet of sample No.1 and No.7 (example of a comparison) is inferior in magnetic properties to each of bond magnets of sample No.2-No.6 (this invention) having outstanding magnetic properties (a residual magnetic flux density Br, maximum magnetic energy (product BH) max, and coercive force HcJ) so that clearly from Table 1.

[0088] (Example 2) The magnet powder (seven sorts of magnet powder to which the aluminum content w was changed variously) by which an alloy presentation is expressed with an approach which is described below by  
8.6(Nd0.65Pr0.25Dy0.1) Fe<sub>81</sub>Co<sub>7</sub>OB<sub>5.5</sub>Al<sub>w</sub> was obtained.

[0089] First, weighing capacity of each raw material of Nd, Pr, Dy, Fe, Co, B, and aluminum was carried out, and the hardener ingot was cast.

[0090] In the inert gas ambient atmosphere, said hardener was dissolved within the crucible with which the orifice with a diameter of 3mm was prepared in the pars basilaris ossis occipitalis, and the alloy molten metal was obtained. This alloy molten metal was made to flow out of an orifice in the place which made temperature of this alloy molten metal 1350 degrees C. At this time, argon gas was injected by the pressure of 60 kgf/cm<sup>2</sup> from the gas injection nozzle which is directly under an orifice, and magnet powder was obtained by quenching an alloy molten metal. Thus, the mean particle diameter of each obtained magnet powder is shown in Table 2.

[0091] Heat treatment for 700 degree-Cx 600 seconds was performed among the argon gas ambient atmosphere to each obtained magnet powder.

[0092] About the magnet powder with which this heat treatment was performed, in order to analyze that phase configuration, the X diffraction was performed at

20 degrees - 60 degrees of angle of diffractions using Cu-K $\alpha$ . It was checked that an R2 (Fe-Co)<sub>14</sub>B type phase (hard magnetism phase) exists, and  $\alpha$ -(Fe, Co) type phase (soft magnetism phase) exists with it as a main phase from a diffraction pattern. Furthermore, forming complex tissue (nano composite organization) was checked by each from the observation result by the transmission electron microscope (TEM). About each magnet powder, the diameter of average crystal grain of each phase is shown in Table 2.

[0093] as a small amount of hydrazine system anti-oxidant and lubricant to this magnet powder as [ polyamide resin (Nylon 12) ] -- mixing -- these -- 225degree-Cx -- for 15 minutes, it kneaded and the constituent for bond magnets (compound) was produced. At this time, the rate of a compounding ratio (weight ratio) of magnet powder and polyamide resin (Nylon 12) was made into the value almost equal about each bond magnet. That is, the content (content) of the magnet powder in each bond magnet was about 95 wt(s)%.

[0094] Subsequently, this compound was ground, it presupposed that it is granular, extrusion molding of this granular object was carried out using the extruding press machine, it cut to predetermined die length, and the isotropic bond magnet of the shape of a cylinder with a diameter [ of 10mm ] x height of 7mm was obtained. The die temperature at the time of shaping was 150 degrees C.

[0095] About these bond magnets, after giving pulse magnetization with a magnetic field strength of 3.2MA [/m ], magnetic properties (flux density Br, coercive force HcJ, and maximum magnetic energy (product BH) max) were measured by maximum impression magnetic field 2.0 MA/m with the dc self-recording fluxmeter (the Toei Industry make, TRF-5BH). The temperature at the time of measurement was 23 degrees C (room temperature).

[0096] About each bond magnet, the aluminum content w, flux density Br, coercive force HcJ, and the value of maximum magnetic energy (product BH) max are shown in Table 2.

[0097]

[Table 2]

サンプルNo.	w	平均粒径 ( $\mu\text{m}$ )	平均結晶粒径 (nm)	B r (T)	H <sub>cJ</sub> (k A/m)	(BH) <sup>max</sup> (k J/m <sup>3</sup> )
8 (比較例)	0	35	78	0.59	405	52.3
9 (本発明)	0.04	37	53	0.72	541	73.2
10 (本発明)	0.1	34	47	0.73	553	76.5
11 (本発明)	0.2	36	43	0.75	585	80.3
12 (本発明)	0.5	33	39	0.75	603	81.2
13 (本発明)	1.5	38	45	0.74	579	79.9
14 (比較例)	2.2	33	72	0.61	431	56.5

[0098] Sample No.8 and the bond magnet of No.14 (example of a comparison) are inferior in magnetic properties to each of bond magnets of sample No.9- No.13 (this invention) having outstanding magnetic properties (a residual magnetic flux density Br, maximum magnetic energy (product BH) max, and coercive force HcJ) so that clearly from Table 2.

[0099]

[Effect of the Invention] According to this invention, the following effectiveness is acquired as stated above.

[0100] - Since magnet powder consists of complex tissues which have the hard magnetism phase and soft magnetism phase as a main phase, while high magnetization is obtained, it has moderate coercive force and excel also in magnetization nature.

- It is suitable for manufacturing a bond magnet by the manufacture approach that the degree of freedom of configuration selections, such as an injection-molding method and an extrusion method, is high and that productivity is high.
- Since magnet powder is obtained directly, without passing through processes, such as grinding, by carrying out spraying quenching of the alloy molten metal, a production process is simplified and low cost-ization of it is attained.

---

[Translation done.]

\* NOTICES \*

JPO and NCIPi are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

---

## DESCRIPTION OF DRAWINGS

---

[Brief Description of the Drawings]

[Drawing 1] It is drawing showing typically an example of complex tissue (nano composite organization) in the magnet powder of this invention.

[Drawing 2] It is drawing showing typically an example of complex tissue (nano composite organization) in the magnet powder of this invention.

[Drawing 3] It is drawing showing typically an example of complex tissue (nano composite organization) in the magnet powder of this invention.

[Description of Notations]

10 Software Magnetism Phase

11 Hard Magnetism Phase

---

[Translation done.]

\* NOTICES \*

JPO and NCIPi are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

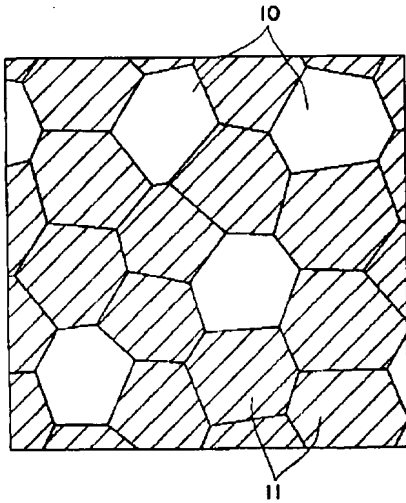
- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

---

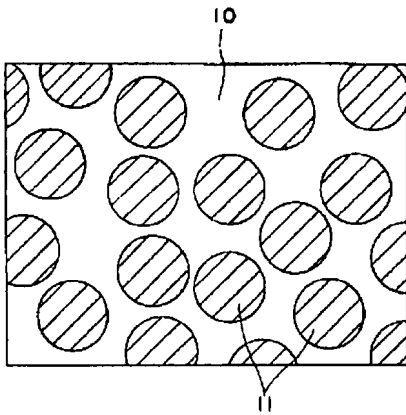
## DRAWINGS

---

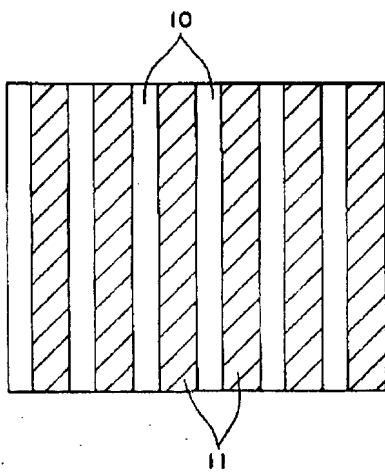
[Drawing 1]



[Drawing 2]



[Drawing 3]



---

[Translation done.]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2001-244105

(P2001-244105A)

(43) 公開日 平成13年9月7日 (2001.9.7)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テマコード* (参考)
H 0 1 F	1/06	B 2 2 F	1/00 Y 4 K 0 1 7
B 2 2 F	1/00		3/00 C 4 K 0 1 8
	3/00		9/08 A 5 E 0 4 0
	9/08	C 2 1 D	6/00 B
C 2 1 D	6/00	C 2 2 C	33/02 H

審査請求 未請求 請求項の数 9 O L (全 9 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2000-51368(P2000-51368)

(22) 出願日 平成12年2月28日 (2000.2.28)

(71) 出願人 000002369

セイコーエプソン株式会社

東京都新宿区西新宿2丁目4番1号

(72) 発明者 新井 聖

長野県諏訪市大和3丁目3番5号 セイコーエプソン株式会社内

(74) 代理人 100093388

弁理士 鈴木 喜三郎 (外2名)

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 磁石粉末および等方性ボンド磁石

(57) 【要約】

【課題】 成形性および磁気特性に優れた磁石を提供することができる磁石粉末および等方性ボンド磁石を提供すること。

【解決手段】 本発明の磁石粉末は、 $R_x (Fe_{1-y}Co_y)_{100-x-z-w}B_2Al_w$  (ただし、Rは、少なくとも1種の希土類元素、 $x: 7.1 \sim 9.9$  原子%、 $y: 0 \sim 0.30$ 、 $z: 4.6 \sim 6.9$  原子%、 $w: 0.02 \sim 1.5$  原子%) で表される合金組成の溶湯を噴霧急冷することにより得られる磁石粉末であって、その構成組織が主相としてのハード磁性相と、ソフト磁性相とを有する複合組織である。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】  $R_x(Fe_{1-y}Co_y)_{100-x-z-w}B_zAl_w$   
 (ただし、Rは、少なくとも1種の希土類元素、x:

7.1~9.9原子%、y:0~0.30、z:4.6~6.9原子%、w:0.02~1.5原子%)で表される合金組成の溶湯を噴霧急冷することにより得られる磁石粉末であって、

その構成組織が主相としてのハード磁性相と、ソフト磁性相とを有する複合組織であることを特徴とする磁石粉末。

【請求項2】 前記複合組織は、ナノコンポジット組織である請求項1に記載の磁石粉末。

【請求項3】 磁石粉末は、ガスまたは液体を用いたアトマイズ法により製造されたものである請求項1または2に記載の磁石粉末。

【請求項4】 平均結晶粒径が5~500nmである請求項1ないし3のいずれかに記載の磁石粉末。

【請求項5】 平均粒径が1~150 $\mu$ mである請求項1ないし4のいずれかに記載の磁石粉末。

【請求項6】 磁石粉末は、少なくとも1回熱処理が施されたものである請求項1ないし5のいずれかに記載の磁石粉末。

【請求項7】 請求項1ないし6のいずれかに記載の磁石粉末を結合樹脂で結合してなることを特徴とする等方性ボンド磁石。

【請求項8】 請求項1ないし6のいずれかに記載の磁石粉末と、熱可塑性樹脂とを混合してなる組成物を射出成形または押出成形して得られることを特徴とする等方性ボンド磁石。

【請求項9】 Alを含有する合金溶湯を噴霧急冷することにより得られ、その構成組織が主相としてのハード磁性相と、ソフト磁性相とを有する複合組織である磁石粉末を結合樹脂で結合してなることを特徴とする等方性ボンド磁石。

## 【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、磁石粉末および等方性ボンド磁石に関するものである。

【0002】

【従来の技術】ボンド磁石は、磁石粉末と結合樹脂(有機バインダー)との混合物(コンパウンド)を所望の形状に加圧形成して製造されるものであるが、その成形方法には、圧縮成形法、押出成形法、射出成形法等が利用されている。

【0003】その中でも、射出成形法、押出成形法(特に、射出成形法)は、形状選択の自由度が高く、生産性が高いという利点がある。

【0004】これらの成形方法を用いてボンド磁石を製造する場合、成形機内におけるコンパウンドの流動性を十分に高める必要がある。従来、コンパウンドの流動性

を高めるために、アトマイズ法等により製造された磁石粉末が用いられていた。

【0005】しかし、アトマイズ法により得られる磁石粉末の磁気特性は、他の製造方法により得られる磁石粉末と比較して低く、その用途等によっては、満足できるものではなかった。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】本発明の目的は、成形性および磁気特性に優れた磁石を提供することができる磁石粉末および等方性ボンド磁石を提供することにある。

【0007】

【課題を解決するための手段】このような目的は、下記(1)~(9)の本発明により達成される。

【0008】(1)  $R_x(Fe_{1-y}Co_y)_{100-x-z-w}B_zAl_w$  (ただし、Rは、少なくとも1種の希土類元素、x:7.1~9.9原子%、y:0~0.30、z:

4.6~6.9原子%、w:0.02~1.5原子%)で表される合金組成の溶湯を噴霧急冷することにより得られる磁石粉末であって、その構成組織が主相としてのハード磁性相と、ソフト磁性相とを有する複合組織であることを特徴とする磁石粉末。

【0009】(2) 前記複合組織は、ナノコンポジット組織である上記(1)に記載の磁石粉末。

【0010】(3) 磁石粉末は、ガスまたは液体を用いたアトマイズ法により製造されたものである上記(1)または(2)に記載の磁石粉末。

【0011】(4) 平均結晶粒径が5~500nmである上記(1)ないし(3)のいずれかに記載の磁石粉末。

【0012】(5) 平均粒径が1~150 $\mu$ mである上記(1)ないし(4)のいずれかに記載の磁石粉末。

【0013】(6) 磁石粉末は、少なくとも1回熱処理が施されたものである上記(1)ないし(5)のいずれかに記載の磁石粉末。

【0014】(7) 上記(1)ないし(6)のいずれかに記載の磁石粉末を結合樹脂で結合してなることを特徴とする等方性ボンド磁石。

【0015】(8) 上記(1)ないし(6)のいずれかに記載の磁石粉末と、熱可塑性樹脂とを混合してなる組成物を射出成形または押出成形して得られることを特徴とする等方性ボンド磁石。

【0016】(9) Alを含有する合金溶湯を噴霧急冷することにより得られ、その構成組織が主相としてのハード磁性相と、ソフト磁性相とを有する複合組織である磁石粉末を結合樹脂で結合してなることを特徴とする等方性ボンド磁石。

【0017】

【発明の実施の形態】以下、本発明の磁石粉末および等方性ボンド磁石の実施の形態について、詳細に説明す

る。

【0018】〔磁石粉末の合金組成〕本発明の磁石粉末は、 $R_x(Fe_{1-y}Co_y)_{100-x-z-w}B_zAl_w$ （ただし、Rは少なくとも1種の希土類元素、 $x: 7.1 \sim 9.9$ 原子%、 $y: 0 \sim 0.30$ 、 $z: 4.6 \sim 6.9$ 原子%、 $w: 0.02 \sim 1.5$ 原子%）で表される合金組成からなるものである。

【0019】R（希土類元素）としては、Y、La、Ce、Pr、Nd、Pm、Sm、Eu、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb、Lu、ミッシュメタルが挙げられ、これらを1種または2種以上含むことができる。

【0020】Rの含有量（含有率）は、 $7.1 \sim 9.9$ 原子%とされる。Rが $7.1$ 原子%未満では、十分な保磁力が得られず、Alを添加しても保磁力の向上が小さい。一方、Rが $9.9$ 原子%を超えると、磁化のポテンシャルが下がるため、十分な磁束密度が得られなくなる。

【0021】ここで、RはNdおよび／またはPrを主とする希土類元素であるのが好ましい。その理由は、これらの希土類元素は、複合組織（特にナノコンボジット組織）を構成するハード磁性相の飽和磁化を高め、また磁石として良好な保磁力を実現するために有効だからである。

【0022】また、Rは、Prを含み、その割合がR全体に対し $5 \sim 75\%$ であるのが好ましく、 $20 \sim 60\%$ であるのがより好ましい。この範囲であると、残留磁束密度の低下をほとんど生じることなく、保磁力および角型性を向上させることができるためである。

【0023】また、Rは、Dyを含み、その割合がR全体に対し $14\%$ 以下であるのが好ましい。この範囲であると、残留磁束密度の著しい低下を生じることなく、保磁力を向上させることができると共に、温度特性（熱的安定性）の向上も可能となるからである。

【0024】Coは、Feと同様の特性を有する遷移金属である。このCoを添加すること（Feの一部を置換すること）により、キュリー温度が高くなり、温度特性が向上するが、Feに対するCoの置換比率が $0.30$ を超えると、保磁力、磁束密度は共に低下する傾向を示す。Feに対するCoの置換比率が $0.05 \sim 0.20$ の範囲では、温度特性の向上のみならず、磁束密度自体も向上するので、さらに好ましい。

【0025】B（ボロン）は、高い磁気特性を得るのに有効な元素であり、その含有量は、 $4.6 \sim 6.9$ 原子%とされる。Bが $4.6$ 原子%未満であると、B-H（J-H）ループにおける角型性が悪くなる。一方、Bが $6.9$ 原子%を超えると、非磁性相が多くなり、磁束密度が急減する。

【0026】Alは、保磁力向上にとって有利な元素であり、特に、 $0.02 \sim 1.5$ 原子%の範囲で保磁力向

上の効果が顕著に現れる。また、この範囲では、保磁力向上に追従して、角型性および最大磁気エネルギー積も向上する。さらに、耐熱性および耐食性についても良好となる。ただし、上述したように、Rが $7.1$ 原子%未満では、Al添加によるこのような効果は非常に小さい。また、Alが $1.5$ 原子%を超えると、磁化の低下が生じる。

【0027】なお、Al自体は新規な物質ではないが、本発明では、実験、研究を重ねた結果、ソフト磁性相とハード磁性相を有する複合組織で構成される磁石粉末において、Alを $0.02 \sim 1.5$ 原子%の範囲で含有せしめることにより、①優れた角型性、最大磁気エネルギー積を確保しつつ保磁力の向上が図れる、②不可逆減磁率の改善（絶対値の低減）が図れる、③良好な耐食性を保持できる、という3つの効果が得られること、特にこれらの効果が同時に得られることを見出したものであり、この点に本発明の意義がある。

【0028】このように、本発明では、Alを微量または少量含有せしめることにその特徴を見出したものであり、 $1.5$ 原子%を超える量を添加することは、むしろ逆効果であり、本発明の意図するところではない。

【0029】なお、Al含有量の好ましい範囲は、前述したように $0.02 \sim 1.5$ 原子%であるが、この範囲の上限値は、 $1.0$ 原子%であるのがより好ましく、 $0.8$ 原子%であるのがさらに好ましい。

【0030】また、磁気特性をさらに向上させる等の目的で、磁石粉末を構成する合金中には、必要に応じ、Cu、Si、Ga、Ti、V、Ta、Zr、Nb、Mo、Hf、Ag、Zn、P、Ge、Cr、Wよりなる群（以下この群を「Q」で表す）から選択される少なくとも1種の元素を含有することもできる。Qに属する元素を含有する場合、その含有量は、 $2$ 原子%以下であるのが好ましく、 $0.1 \sim 1.5$ 原子%であるのがより好ましく、 $0.2 \sim 1.0$ 原子%であるのがさらに好ましい。

【0031】Qに属する元素の含有は、その種類に応じた固有の効果を発揮する。例えば、Cu、Si、Ga、V、Ta、Zr、Cr、Nbは、耐食性を向上させる効果がある。

【0032】〔複合組織〕また、磁石粉末は、主相としてのハード磁性相と、ソフト磁性相とを有する複合組織で構成されている。

【0033】この複合組織（ナノコンボジット組織）は、ソフト磁性相10とハード磁性相11とが、例えば、図1、図2または図3に示すようなパターン（モデル）で存在しており、各相の厚さや粒径がナノメートルレベルで存在している。そして、ソフト磁性相10とハード磁性相11とが相隣接し（粒界相を介して隣接する場合も含む）、磁気的な交換相互作用を生じる。

【0034】この複合組織の主相は、ハード磁性相である。これにより、保磁力および角型性に優れた磁気特性

が得られる。

【0035】各相の平均結晶粒径は、5～500nmであるのが好ましく、10～200nmであるのがより好ましい。各相の平均結晶粒径が下限値未満であると、結晶粒間の交換相互作用の影響が強くなり過ぎて、磁化反転が容易になり、保磁力が劣化する場合がある。

【0036】一方、各相の平均結晶粒径が上限値を超えると、結晶粒径の粗大化と、結晶粒間の交換相互作用の影響が弱くなることから、磁束密度、保磁力、角型性、最大エネルギー積が劣化する場合がある。

【0037】なお、図1～図3に示すパターンは、一例であって、これらに限られるものではない。

【0038】ソフト磁性相の磁化は、外部磁界の作用により容易にその向きを変えるので、主相であるハード磁性相に混在すると、系全体の磁化曲線は、B-H図の第二象現で段のある「へび型曲線」となる。しかし、ソフト磁性相のサイズが十分小さい場合には、ソフト磁性体の磁化が周囲のハード磁性体の磁化との結合によって十分強く拘束され、系全体がハード磁性体として振舞うようになる。

【0039】このような複合組織（ナノコンポジット組織）を持つ磁石は、主に、以下に挙げる特徴1)～5)を有している。

【0040】1) B-H図（J-H図）の第二象現で、磁化が可逆的にスプリングバックする（この意味で「スプリング磁石」とも言う）。

2) 着磁性が良く、比較的低い磁場で着磁できる。

3) 磁気特性の温度依存性がハード磁性相単独の場合に比べて小さい。

4) 磁気特性の経時変化が小さい。

5) 微粉碎しても磁気特性が劣化しない。

【0041】前述した合金組成において、ハード磁性相およびソフト磁性相は、例えば次のようなものとなる。

【0042】ハード磁性相： $R_2TM_{14}B$ 系（ただし、TMは、FeまたはFeとCo）、または $R_2(TM, Al)_{14}B$ 系（あるいは、 $R_2(TM, Q)_{14}B$ 系、 $R_2(TM, Al, Q)_{14}B$ 系）

ソフト磁性相：TM（特に $\alpha-Fe$ 、 $\alpha-(Fe, Co)$ ）、またはTMとAlとの合金相、TMとBとの化合物相、TMとBとAlとの化合物相（あるいは、これらのQを含む相）

【0043】〔磁石粉末の製造方法〕本発明の磁石粉末は、噴霧法を用いて、前述した合金組成の溶湯を噴霧急冷することにより製造されたものである。噴霧法としては、例えば、水、液体窒素、液体アルゴン等の液体を用いた液体急冷アトマイズ法や、アルゴンガス、ヘリウムガス、窒素ガス等の不活性ガスを用いたガスアトマイズ法等が挙げられる。

【0044】このような方法を用いることにより、製造条件の設定等により、略球形状等の磁石粉末を容易に製

造することができる。

【0045】また、粉碎等の工程を経ることなく、磁石粉末が直接得られるので、製造工程が簡略化され、低コスト化が可能となる。

【0046】以下、ガスアトマイズ法の一例について説明する。ガスアトマイズ法により、磁石粉末を製造する装置（磁石粉末製造装置）は、磁石材料を収納しうる筒体と、不活性ガスを噴射するガス噴射ノズルとで構成されている。

【0047】筒体の下端には、磁石材料（合金）の溶湯を射出するノズル（オリフィス）が形成されている。

【0048】また、筒体のノズル近傍の外周には、加熱用のコイルが配置され、このコイルに例えば、高周波を印加することにより、筒体内を加熱し、筒体内の磁石材料を溶解状態にする。合金溶湯が流出するノズルの直下には、ガス噴射ノズルが設けられている。

【0049】このような磁石粉末製造装置は、チャンバー内に設置され、該チャンバー内に、好ましくは不活性ガスやその他の雰囲気ガスが充填された状態で作動する。特に、磁石粉末の酸化を防止するために、雰囲気ガスは、例えばアルゴンガス、ヘリウムガス、窒素ガス等の不活性ガスであるのが好ましい。

【0050】磁石粉末製造装置では、筒体内に磁石材料（合金）を入れ、コイルにより加熱して熔融し、その溶湯をノズルから吐出すると、ノズルの直下に設けられたガス噴射ノズルから、アルゴンガス、ヘリウムガス、窒素ガス等の不活性ガスが噴射され、合金溶湯は、急冷され磁石粉末が得られる。

【0051】このとき、ノズル（オリフィス）から流出させる合金溶湯の温度は、合金組成等により若干異なるが、1200～1600℃であるのが好ましく、1300～1500℃であるのがより好ましい。

【0052】また、ガス噴射ノズルから噴射される不活性ガスの圧力は、特に限定されないが、10～200kgf/cm<sup>2</sup>であるのが好ましく、15～100kgf/cm<sup>2</sup>であるのがより好ましい。

【0053】また、磁石粉末の平均粒径は、1～150μmであるのが好ましく、5～80μmであるのがより好ましい。磁石粉末の平均粒径が、下限値未満であると、磁石粉末表面の酸化している部分の体積率が粉末の全体積に比べて無視できなくなり、結果として低い磁気特性しか得られない場合がある。また発火の恐れがあるなど取扱上の問題も生じる。一方、磁石粉末の平均粒径が、上限値を超えると、磁石粉末がボンド磁石の製造に用いられる場合、ボンド磁石の成形時における磁石用組成物（コンパウンド）の流動性が十分に得られない可能性がある。

【0054】また、ボンド磁石の成形時のより良好な成形性を得るために、得られる磁石粉末の粒径分布は、ある程度分散されている（バラツキがある）のが好まし

い。これにより、得られたボンド磁石の空孔率を低減することができ、その結果、ボンド磁石中の磁石粉末の含有量を同じとしたときに、ボンド磁石の密度や機械的強度をより高めることができ、磁気特性をさらに向上することができる。

【0055】なお、得られた磁石粉末に対しては、例えば、非晶質組織の再結晶化の促進、組織の均質化等を目的として、少なくとも1回熱処理を施すこともできる。この熱処理の条件としては、例えば、400～900℃で、0.5～300分程度とすることができる。

【0056】また、この熱処理は、酸化を防止するために、真空または減圧状態下（例えば $1 \times 10^{-1}$ ～ $1 \times 10^{-6}$  Torr）、あるいは窒素ガス、アルゴンガス、ヘリウムガス等の不活性ガス中のような、非酸化性雰囲気で行うのが好ましい。

【0057】以上のような磁石粉末を用いてボンド磁石を製造した場合、そのような磁石粉末は、結合樹脂との結合性（結合樹脂の濡れ性）が良く、そのため、このボンド磁石は、機械的強度が高く、熱安定性（耐熱性）、耐食性が優れたものとなる。従って、当該磁石粉末は、ボンド磁石の製造に適している。

【0058】〔ボンド磁石およびその製造〕次に、本発明の等方性ボンド磁石（以下、単に「ボンド磁石」とも言う）について説明する。

【0059】本発明のボンド磁石は、好ましくは、前述の磁石粉末を結合樹脂で結合してなるものである。

【0060】結合樹脂（バインダー）としては、熱可塑性樹脂、熱硬化性樹脂のいずれでもよい。

【0061】熱可塑性樹脂としては、例えば、ポリアミド（例：ナイロン6、ナイロン46、ナイロン66、ナイロン610、ナイロン612、ナイロン11、ナイロン12、ナイロン6-12、ナイロン6-66）、熱可塑性ポリイミド、芳香族ポリエステル等の液晶ポリマー、ポリフェニレンオキシド、ポリフェニレンサルファイド、ポリエチレン、ポリプロピレン、エチレン-酢酸ビニル共重合体等のポリオレフィン、変性ポリオレフィン、ポリカーボネート、ポリメチルメタクリレート、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート等のポリエステル、ポリエーテル、ポリエーテルエーテルケトン、ポリエーテルイミド、ポリアセタール等、またはこれらを主とする共重合体、ブレンド体、ポリマーアロイ等が挙げられ、これらのうちの1種または2種以上を混合して用いることができる。

【0062】これらのうちでも、成形性が特に優れており、機械的強度が高いことから、ポリアミド、耐熱性向上の点から、液晶ポリマー、ポリフェニレンサルファイドを主とするものが好ましい。また、これらの熱可塑性樹脂は、磁石粉末との混練性にも優れている。

【0063】このような熱可塑性樹脂は、その種類、共重合化等により、例えば成形性を重視したものや、耐熱

性、機械的強度を重視したものというように、広範囲の選択が可能となるという利点がある。

【0064】一方、熱硬化性樹脂としては、例えば、ビスフェノール型、ノボラック型、ナフタレン系等の各種エポキシ樹脂、フェノール樹脂、ユリア樹脂、メラミン樹脂、ポリエステル（不飽和ポリエステル）樹脂、ポリイミド樹脂、シリコン樹脂、ポリウレタン樹脂等が挙げられ、これらのうちの1種または2種以上を混合して用いることができる。

【0065】これらのうちでも、成形性が特に優れており、機械的強度が高く、耐熱性に優れるという点から、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、ポリイミド樹脂、シリコン樹脂が好ましく、エポキシ樹脂が特に好ましい。また、これらの熱硬化性樹脂は、磁石粉末との混練性、混練の均一性にも優れている。

【0066】なお、使用される熱硬化性樹脂（未硬化）は、室温で液状のものでも、固形（粉末状）のものでもよい。

【0067】このような本発明のボンド磁石は、例えば次のようにして製造される。磁石粉末と、結合樹脂と、必要に応じ添加剤（酸化防止剤、潤滑剤等）とを混合、混練（例えば、温間混練）してボンド磁石用組成物（コンパウンド）を製造し、このボンド磁石用組成物を用いて、射出成形、押出成形、圧縮成形（プレス成形）等の成形方法により、無磁場中で所望の磁石形状に成形する。結合樹脂が熱硬化性樹脂の場合には、成形後、加熱等によりそれを硬化する。

【0068】射出成形は、磁石の形状に対する自由度が大きく、特に複雑な形状の磁石をも容易に製造できるという利点を有している。また、押出成形は、射出成形と同様に、磁石の形状に対する自由度が大きく、生産性も高いという利点を有している。

【0069】本発明の磁石粉末は、高い流動性を有しており、ボンド磁石を押出成形または射出成形により製造するのに適している。したがって、押出成形または射出成形により製造されたボンド磁石であるのが好ましい。

【0070】ボンド磁石中の磁石粉末の含有量（含有率）は、特に限定されず、通常は、成形方法や、成形性と高磁気特性との両立を考慮して決定される。具体的には、75～99.5wt%程度であるのが好ましく、85～97.5wt%程度であるのがより好ましい。

【0071】特に、ボンド磁石が押出成形または射出成形により製造されたもの場合には、磁石粉末の含有量は、75～98wt%程度であるのが好ましく、85～97wt%程度であるのがより好ましい。

【0072】この場合、用いられる結合樹脂は、混練時、成形時におけるコンパウンドの流動性の点で、前述した熱可塑性樹脂であるのが好ましい。

【0073】また、ボンド磁石が圧縮成形により製造されたもの場合には、磁石粉末の含有量は、90～9

9.5 wt%程度であるのが好ましく、93~98.5 wt%程度であるのがより好ましい。

【0074】本発明では、磁石粉末の磁束密度、保磁力が大きいため、ボンド磁石に成形した場合に、磁石粉末の含有量が多い場合はもちろんのこと、含有量が比較的少ない場合でも、優れた磁気特性（特に、高い最大磁気エネルギー積 $(BH)_{max}$ ）が得られる。したがって、射出成形や押出成形のように、圧縮成形に比べ磁石粉末の含有量（含有率）を高くすることのできない方法でボンド磁石が製造される場合でも、優れた磁気特性が得られる。

【0075】本発明のボンド磁石の形状、寸法等は特に限定されず、例えば、形状に関しては、例えば、円柱状、角柱状、円筒状（リング状）、円弧状、平板状、湾曲板状等のあらゆる形状のものが可能であり、その大きさも、大型のものから超小型のものまであらゆる大きさのものが可能である。

【0076】

【実施例】次に、本発明の具体的実施例について説明する。

【0077】（実施例1）以下に述べるような方法で合金組成が $(Nd_{0.7}Pr_{0.25}Dy_{0.05})_{8.6}Fe_{bal}Co_{7.0}B_{5.4}Al_w$ で表される磁石粉末（Al含有量wを種々変化させた7種の磁石粉末）を得た。

【0078】まず、Nd、Pr、Dy、Fe、Co、B、Alの各原料を秤量して母合金インゴットを鋳造した。

【0079】不活性ガス雰囲気中で、底部に直径3mmのオリフィスが設けられたるつば内で前記母合金を溶解し、合金溶湯を得た。この合金溶湯の温度を1350℃としたところで、オリフィスからこの合金溶湯を流出させた。このとき、オリフィスの直下にあるガス噴射ノズルからアルゴンガスを50 kgf/cm<sup>2</sup>の圧力で噴射して、合金溶湯を急冷することにより磁石粉末を得た。このようにして得られた各磁石粉末の平均粒径を表1に示す。

【0080】得られた各磁石粉末に対して、アルゴンガ

ス雰囲気中、700℃×600秒の熱処理を施した。

【0081】この熱処理の施された磁石粉末について、その相構成を分析するため、Cu-K $\alpha$ を用い回折角20°~60°にてX線回折を行った。回折パターンから、主相として、 $R_2(Fe \cdot Co)_{14}$ B型相（ハード磁性相）が存在し、また、それとともに、 $\alpha-(Fe, Co)$ 型相（ソフト磁性相）が存在することが確認された。さらに、透過型電子顕微鏡（TEM）による観察結果から、いずれも、複合組織（ナノコンポジット組織）を形成していることが確認された。各磁石粉末について、各相の平均結晶粒径を表1に示す。

【0082】この磁石粉末に、ポリアミド樹脂（ナイロン12）と、少量のヒドラジン系酸化防止剤および潤滑剤とを混合し、これらを225℃×15分間、混練してボンド磁石用組成物（コンパウンド）を作製した。このとき、磁石粉末とポリアミド樹脂（ナイロン12）との配合比率（重量比）は、各ボンド磁石についてほぼ等しい値とした。すなわち、各ボンド磁石中の磁石粉末の含有量（含有率）は、約93 wt%であった。

【0083】次いで、このコンパウンドを粉砕して粒状とし、この粒状物を射出成形機（（株）日本製鋼所製、J50-E2）を用いて射出成形し、直径10mm×高さ7mmの円柱状の等方性ボンド磁石を得た。成形時の金型温度は、90℃、射出シリンダー内温度は、225℃であった。

【0084】これらのボンド磁石について、磁場強度3.2 MA/mのパルス着磁を施した後、直流自記磁束計（東英工業（株）製、TRF-5BH）にて最大印加磁場2.0 MA/mで磁気特性（磁束密度Br、保磁力H<sub>cJ</sub>および最大磁気エネルギー積 $(BH)_{max}$ ）を測定した。測定時の温度は、23℃（室温）であった。

【0085】各ボンド磁石について、Al含有量w、磁束密度Br、保磁力H<sub>cJ</sub>、および最大磁気エネルギー積 $(BH)_{max}$ の値を表1に示す。

【0086】

【表1】

サンプルNo.	w	平均粒径 ( $\mu m$ )	平均結晶粒径 (nm)	Br (T)	H <sub>cJ</sub> (kA/m)	$(BH)_{max}$ (kJ/m <sup>3</sup> )
1（比較例）	0	40	77	0.50	396	39.5
2（本発明）	0.04	39	57	0.62	489	58.2
3（本発明）	0.1	38	51	0.64	515	60.3
4（本発明）	0.2	39	47	0.66	530	64.5
5（本発明）	0.5	41	44	0.68	562	66.7
6（本発明）	1.5	43	50	0.65	541	61.9
7（比較例）	2.2	40	75	0.52	402	40.6

【0087】表1から明らかなように、サンプルNo. 2~No. 6（本発明）のボンド磁石は、いずれも、優れた磁気特性（残留磁束密度Br、最大磁気エネルギー積 $(BH)_{max}$ および保磁力H<sub>cJ</sub>）を有しているのに対

し、サンプルNo. 1、No. 7（比較例）のボンド磁石は、磁気特性が劣っている。

【0088】（実施例2）以下に述べるような方法で合金組成が $(Nd_{0.65}Pr_{0.25}Dy_{0.1})_{8.6}Fe_{bal}Co$

7.0 B<sub>5.5</sub> Al<sub>w</sub>で表される磁石粉末 (Al含有量wを種々変化させた7種の磁石粉末)を得た。

【0089】まず、Nd、Pr、Dy、Fe、Co、B、Alの各原料を秤量して母合金インゴットを鋳造した。

【0090】不活性ガス雰囲気中で、底部に直径3mmのオリフィスが設けられたるつば内で前記母合金を溶解し、合金溶湯を得た。この合金溶湯の温度を1350℃としたところで、オリフィスからこの合金溶湯を流出させた。このとき、オリフィスの直下にあるガス噴射ノズルからアルゴンガスを60kgf/cm<sup>2</sup>の圧力で噴射して、合金溶湯を急冷することにより磁石粉末を得た。このようにして得られた各磁石粉末の平均粒径を表2に示す。

【0091】得られた各磁石粉末に対して、アルゴンガス雰囲気中、700℃×600秒の熱処理を施した。

【0092】この熱処理の施された磁石粉末について、その相構成を分析するため、Cu-K $\alpha$ を用い回折角20°～60°にてX線回折を行った。回折パターンから、主相として、R<sub>2</sub>(Fe·Co)<sub>14</sub>B型相(ハード磁性相)が存在し、また、それとともに、 $\alpha$ -(Fe, Co)型相(ソフト磁性相)が存在することが確認された。さらに、透過型電子顕微鏡(TEM)による観察結果から、いずれも、複合組織(ナノコンポジット組織)を形成していることが確認された。各磁石粉末につい

て、各相の平均結晶粒径を表2に示す。

【0093】この磁石粉末に、ポリアミド樹脂(ナイロン12)と、少量のヒドラジン系酸化防止剤および潤滑剤とを混合し、これらを225℃×15分間、混練してボンド磁石用組成物(コンパウンド)を作製した。このとき、磁石粉末とポリアミド樹脂(ナイロン12)との配合比率(重量比)は、各ボンド磁石についてほぼ等しい値とした。すなわち、各ボンド磁石中の磁石粉末の含有量(含有率)は、約95wt%であった。

【0094】次いで、このコンパウンドを粉砕して粒状とし、この粒状物を押出成形機を用いて押出成形し、所定長さに切断して、直径10mm×高さ7mmの円柱状の等方性ボンド磁石を得た。成形時の金型温度は、150℃であった。

【0095】これらのボンド磁石について、磁場強度3.2MA/mのパルス着磁を施した後、直流自記磁束計(東英工業(株)製、TRF-5BH)にて最大印加磁場2.0MA/mで磁気特性(磁束密度Br、保磁力H<sub>cJ</sub>および最大磁気エネルギー積(BH)<sub>max</sub>)を測定した。測定時の温度は、23℃(室温)であった。

【0096】各ボンド磁石について、Al含有量w、磁束密度Br、保磁力H<sub>cJ</sub>、および最大磁気エネルギー積(BH)<sub>max</sub>の値を表2に示す。

【0097】

【表2】

サンプルNo.	w	平均粒径 ( $\mu$ m)	平均結晶粒径 (nm)	Br (T)	H <sub>cJ</sub> (kA/m)	(BH) <sub>max</sub> (kJ/m <sup>3</sup> )
8(比較例)	0	35	78	0.59	405	52.3
9(本発明)	0.04	37	53	0.72	541	73.2
10(本発明)	0.1	34	47	0.73	553	76.5
11(本発明)	0.2	36	43	0.75	585	80.3
12(本発明)	0.5	33	39	0.75	603	81.2
13(本発明)	1.5	38	45	0.74	579	79.9
14(比較例)	2.2	33	72	0.61	431	56.5

【0098】表2から明らかなように、サンプルNo. 9～No. 13(本発明)のボンド磁石は、いずれも、優れた磁気特性(残留磁束密度Br、最大磁気エネルギー積(BH)<sub>max</sub>および保磁力H<sub>cJ</sub>)を有しているのに対し、サンプルNo. 8、No. 14(比較例)のボンド磁石は、磁気特性が劣っている。

【0099】

【発明の効果】以上述べたように、本発明によれば、次のような効果が得られる。

【0100】・磁石粉末が主相としてのハード磁性相と、ソフト磁性相とを有する複合組織で構成されているため、高い磁化が得られるとともに、適度な保磁力を有し、また着磁性にも優れている。

・射出成形法、押出成形法等の形状選択の自由度が高く生産性が高い製造方法によりボンド磁石を製造するのに

適している。

・磁石粉末は、合金溶湯を噴霧急冷することにより、粉砕等の工程を経ることなく直接得られるので、製造工程が簡略化され、低コスト化が可能となる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の磁石粉末における複合組織(ナノコンポジット組織)の一例を模式的に示す図である。

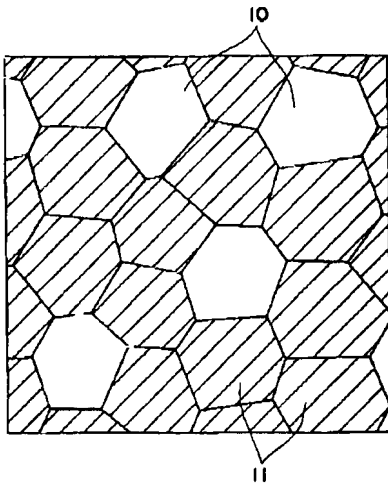
【図2】本発明の磁石粉末における複合組織(ナノコンポジット組織)の一例を模式的に示す図である。

【図3】本発明の磁石粉末における複合組織(ナノコンポジット組織)の一例を模式的に示す図である。

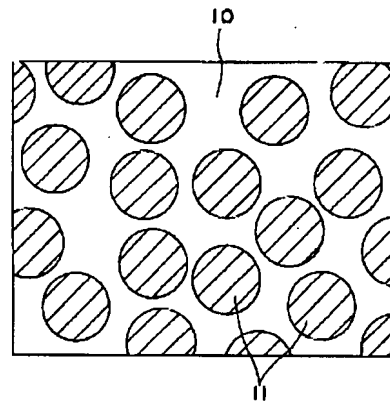
【符号の説明】

10 ソフト磁性相  
11 ハード磁性相

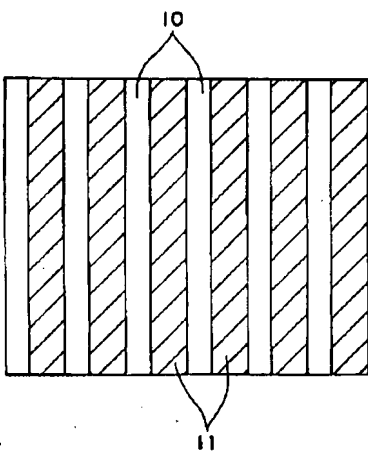
【図1】



【図2】



【図3】



フロントページの続き

(51)Int.Cl.<sup>7</sup>

C 2 2 C 33/02

38/00

H 0 1 F 1/08

識別記号

3 0 3

F I

C 2 2 C 33/02

38/00

H 0 1 F 1/08

1/06

D

3 0 3 D

A

A

(参考)

Fターム(参考) 4K017 AA06 BA06 BB06 BB12 BB13  
CA07 DA04 EB05 EK01 FA05  
FA07 FA11 FA15  
4K018 AA27 BA18 BD01 GA04 KA46  
KA62  
5E040 AA04 AA19 AC05 BB04 BD00  
CA01 HB07 HB11 HB17 NN01  
NN06